

Dosimétrie et spectrométrie *in situ* en milieu immergé

J.M. MÉTIVIER, R. LION*

(Manuscrit reçu le 27 décembre 1994,
révisé le 3 avril 1995, accepté le 31 mai 1996)

RÉSUMÉ Une chambre d'ionisation (mesure du débit de dose) et une chaîne d'analyse de spectrométrie *gamma* (identification de la radioactivité) ont été adaptées à la mesure *in situ* en milieu immergé, le tout commandé à partir d'une embarcation légère. A chaque station, une mesure du débit de dose et un spectre *gamma* sont réalisés simultanément. Un traitement en temps réel des données permet d'optimiser le prélèvement d'échantillons de sédiments. L'analyse de ces derniers en laboratoire permet de valider la méthode. Les données géoréférencées, directement exploitables informatiquement, sont corrélées à différentes cartographies existantes au moyen d'un logiciel de Système d'Information Géographique. Une interrogation par critères croisés permet d'identifier les zones susceptibles de fixer le plus de radionucléides, qui seront celles à surveiller préférentiellement. En outre, il est possible d'intégrer ultérieurement des informations supplémentaires en fonction de nouveaux besoins.

ABSTRACT An ionisation chamber (dose rate measurement) and a *gamma*-spectrometry analysis-chain (identification of the radioactivity) were modified so as to obtain *in situ* measurements in an immersed environment, controlled from a light craft. At each station, dose rate and *gamma* spectra are measured simultaneously. Real time processing makes it possible to optimize sediment sampling. The method has been validated by analysis in the laboratory. The geo-coded data that can be used directly on the computer are correlated with different existing maps using a Geographical Information System. An inquiry language allows identification of areas likely to fix the greatest number of radionuclides; these areas are to be preferentially subjected to surveillance. Moreover, supplementary information can be integrated later according to future needs.

1. Introduction

En France, l'implantation d'installations nucléaires de base est subordonnée au respect d'un ensemble de décrets parus au Journal Officiel. Ces derniers spécifient notamment l'obligation de mesurer le niveau de radioactivité (débit de dose et concentrations) de l'environnement avant la mise en route de l'installation, aussi bien dans le domaine terrestre qu'aquatique (fleuve ou littoral marin) et d'en suivre ensuite l'évolution au cours du temps.

* Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), Département de Protection de l'Environnement et des Installations (DPEI), Service d'Etudes et de Recherches sur les transferts dans l'Environnement (SERE), Centre d'Etudes de Cadarache, France.

Sur terre, une carte du site et du rayonnement *gamma* ambiant est réalisée à partir de mesures *in situ* effectuées au moyen d'appareils disposés en général à l'intérieur d'un véhicule. Les principaux radionucléides du champ irradiant sont identifiés au moyen de prélèvements mesurés au laboratoire, plus rarement identifiés *in situ* au moyen de sondes NaI ou GeLi.

En milieu aquatique, les études d'état de référence (point zéro) sont généralement basées sur des échantillons de sédiments et/ou d'eau de mer et de bioindicateurs. C'est pourquoi l'IPSN/DPEI/SERE a été amené à concevoir un système de mesure *in situ* de la radioactivité des sédiments et/ou de l'eau en associant dosimétrie et spectrométrie *gamma*.

Ce document présente la chaîne de mesure et les premiers résultats obtenus ainsi qu'une méthodologie permettant de cartographier et d'analyser les prospections réalisées.

2. Principe de la méthode et appareillage

Les principaux radionucléides susceptibles d'être mesurés sont ceux contenus dans l'écorce terrestre (émissions telluriques); ceux des sédiments et/ou ceux présents dans l'eau.

Les émissions d'origine cosmique, celles des aérosols et des radionucléides déposés sur le sol présents en milieu terrestre sont, pour le cas considéré ici, négligeables.

Les corps radioactifs naturels de base à longue période retenus dans la lithosphère sont, par ordre d'importance :

- l'uranium 238 (famille uranium-radium),
- le thorium 232 (famille radium),
- l'uranium 235 (famille actino-uranium).

Ces radionucléides et leurs descendants constituent trois grandes familles conduisant toutes à des isotopes stables du plomb : ^{206}Pb , ^{208}Pb et ^{207}Pb . Le potassium 40 est également un radionucléide naturel *gamma* important. Les émetteurs artificiels peuvent être nombreux, certains proviennent de l'industrie nucléaire et d'autres résultent d'expérimentations militaires.

Le tableau I indique la période radioactive pour les principaux radionucléides naturels ou artificiels présents dans l'environnement, ainsi que l'énergie et la probabilité d'émission des principales raies *gamma* consécutives à leur désintégration.

TABLEAU I
 Quelques radionucléides émetteurs *gamma* naturels et artificiels

Radionucléides émetteur gamma	Période en s	Energie en MeV
béryllium 7	4,6 10 ⁶	0,48 (12 %)
potassium 40	4,1 10 ¹⁶	1,46 (11 %)
manganèse 54	2,4 10 ⁷	0,84 (100 %)
cobalt 60	1,6 10 ⁸	1,17 (100 %) 1,33 (100 %)
niobium 95	3,0 10 ⁶	0,77 (99 %)
zirconium 95	5,6 10 ⁶	0,77 (99 %)
ruthénium 106 & rhodium 106	3,7 10 ⁷ 3,0 10 ¹	0,51 (20 %) 0,62 (11 %)
argent 110m	2,2 10 ⁷	0,66 (100 %) 0,88 (80 %)
antimoine 125	6,3 10 ⁷	0,47
césium 134	6,9 10 ⁷	0,60 (97 %) 0,80 (94 %)
césium 137/baryum 137m	9,5 10 ⁸	0,66 (92 %)
bismuth 214	1,2 10 ³	0,61
plomb 214	1,6 10 ³	0,35

La figure 1 décrit la chaîne de mesures composée de deux sondes. L'alimentation et les informations sont véhiculées au moyen d'un câble treuillé quadriconducteur-autoporteur. Les mesures et le positionnement de la station sont centralisés sur un ordinateur, le tout est mis à bord d'une embarcation à très faible tirant d'eau.

2.1 Mesure du débit de dose

Une chaîne de mesure de débit de dose composée d'une chambre d'ionisation à air possédant une alimentation haute tension, un électromètre et un convertisseur tension/fréquence (NOVELEC IC-10.A) et d'un moniteur (NOVELEC RAM-DA.3) ont été adaptés afin de réaliser une mesure *in situ* en milieu immergé.

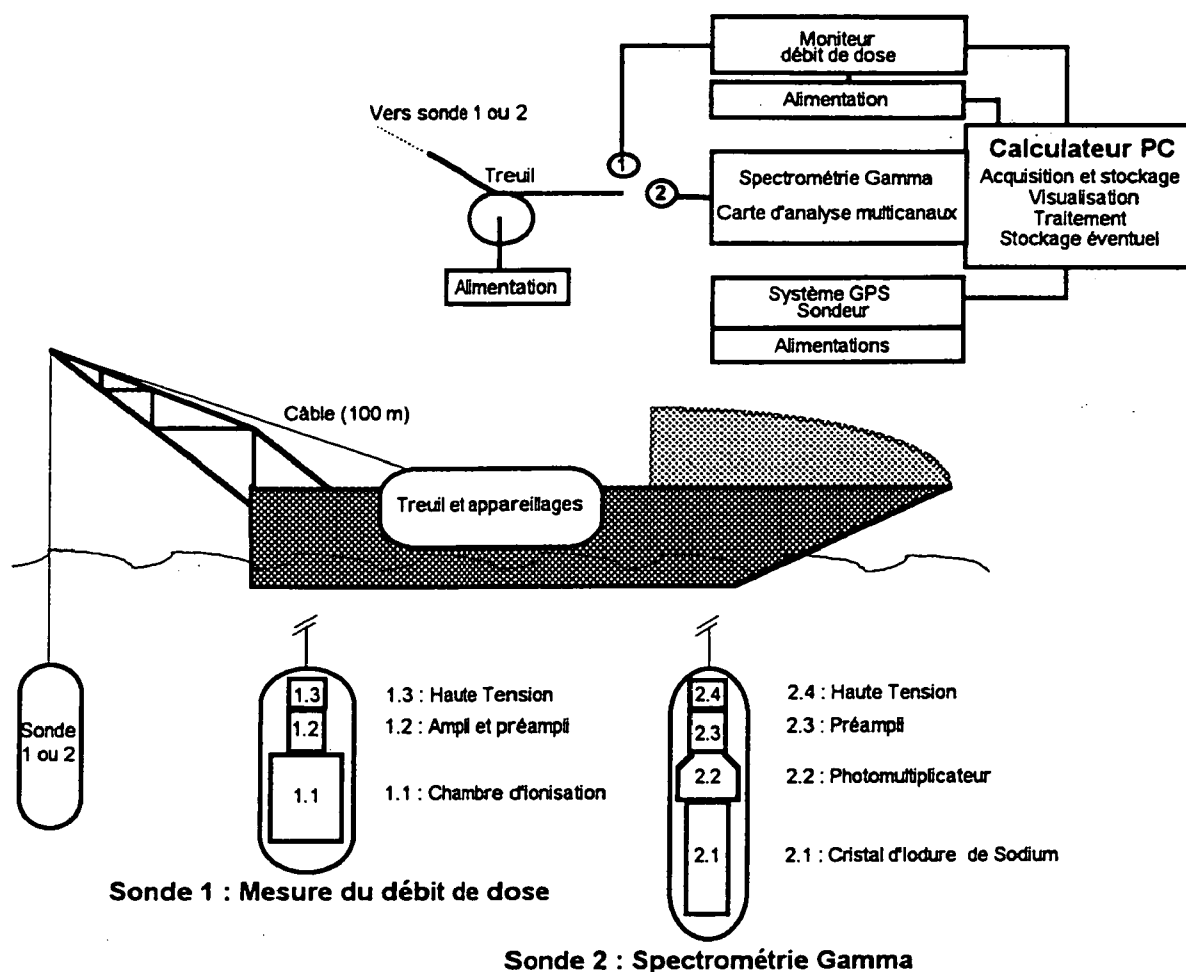


Fig. 1 - Schéma de principe des mesures

La chambre d'ionisation, montée dans une sonde étanche en ertalyte⁽¹⁾, est posée sur les sédiments du milieu prospecté. Les informations délivrées sont visualisées à bord, puis saisies et stockées.

Le tableau II donne les caractéristiques de cette chaîne de mesure, le tableau III donne l'étalonnage de la chambre d'ionisation à l'aide d'une source de cobalt 60. En outre, une vérification a été effectuée par l'emploi de sources de césium 137 et d'américium 241.

2.2 Spectrométrie gamma

La chaîne d'analyse de spectrométrie *gamma* est composée d'un détecteur à scintillation de type NaI(Tl) HARSCHAW et d'une carte multicanal ARIES/TISA. Cette chaîne est autonome et est pilotée par un calculateur P.C. (GRID/SAGEM).

(1) Plastique conçu par la société ERTA : Poly-Ethylène-Téré-Phtalate (densité = 1,39).

TABLEAU II
Caractéristiques de la chambre d'ionisation

Volume	0,5 l
Paroi	300 mg cm ⁻²
Fenêtre frontale	7 mg cm ⁻²
Gamme et affichage	0,1 µSv h ⁻¹ à 200 mSv h ⁻¹
Sensibilité	0,04 µA par mR h ⁻¹
Réponse en énergie	± 20 % de 20 keV à 1,2 MeV
Précision	± 15 %
Dépendance angulaire	<± 5 %
Temps de réponse	2 à 15 s selon la gamme
Moniteur	Ictomètre numérique Échelle de comptage à 2 prétemps Mémorisation, Alarme réglable
Coefficient d'absorption de l'ertalyte	≈ 0,5

TABLEAU III
Étalonnage de la chambre d'ionisation (Source de cobalt 60)

Position	Valeur du débit d'équivalent de dose ambiant (ICRU) à 1-m dans l'air à 20 °C (en Sv h ⁻¹)	Ecart relatif (en %)	Observations
Verticale	2,07 10 ⁻²	+1,5	
Verticale	1,95 10 ⁻³	+1,0	
Verticale	3,50 10 ⁻⁴	+6,6	Bdf de 3 10 ⁻⁶ déduit
Horizontale	2,07 10 ⁻²	-1,9	
Horizontale	1,95 10 ⁻³	-1,5	
Horizontale	3,50 10 ⁻⁴	+1,4	Bdf de 3 10 ⁻⁶ déduit

ICRU : International Commission on Radiation Units.
 Bdf : Bruit de fond.

TABLEAU IV
Caractéristiques de la chaîne de spectrométrie *gamma*

Détecteur :	Cristal iodure de sodium
Taille	4" × 4" × 17"
Résolution	9,2 %
Efficacité relative	≈ 10 % (donnée par le constructeur)
Système d'acquisition multicanaux multivoies	Carte enfichable : bus PC, connecteur 8 bits Convertisseur analogique numérique : WILKINSON 100 MHz Voies d'acquisition : 16 (simultanées ou indépendantes) Taille de chaque spectre : 4 à 16 384 canaux Contenu maximal par canal : 16 10 ⁶ événements
Calculateur PC	AT286, RAM 640 ko, disque dur 20 Mo Système d'exploitation MS-DOS 3.2

Le cristal NaI est couplé optiquement à un photomultiplicateur et alimenté par une haute tension, le tout également renfermé dans une sonde étanche en ertalyte.

Les informations sont transmises au calculateur qui traite et stocke les signaux via une carte d'analyse multicanaux.

Le tableau IV donne les caractéristiques de cette chaîne de spectrométrie *gamma*.

2.3 Positionnement

Le positionnement (latitude et longitude) de la station au droit de laquelle sont réalisées les mesures est donné par un récepteur GPS⁽²⁾ portable-autonome (NAV-5000). Celui-ci utilise cinq canaux qui travaillent simultanément de façon à localiser et recevoir les informations que transmettent plusieurs satellites. La localisation est confirmée, dans la mesure du possible, par une prise d'amers. La profondeur est donnée par un écho-sondeur portable autonome (HONDEX).

(2) Global Positioning System.

A chaque acquisition de mesure de débit de dose ou de spectres *gamma*, les données de positionnement et de profondeur sont introduites dans le calculateur.

3. Résultat et perspectives

3.1 Exemple de résultats

La figure 2 montre pour une valeur de débit de dose le spectre associé identifié simultanément sur l'une des stations mesurées.

La valeur du débit de dose est celle d'une formation sédimentaire. Les principaux émetteurs *gamma* ont été identifiés : il s'agit de radionucléides naturels uniquement.

Cet exemple est issu de l'étude d'un état radiologique de référence d'une baie en France qui est actuellement en cours de réalisation.

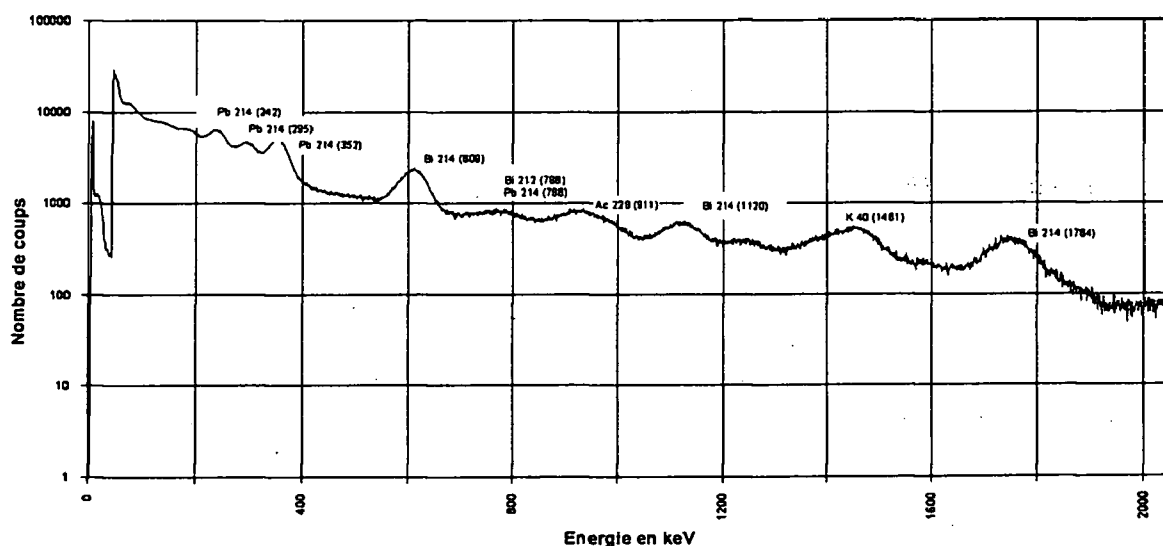


Fig. 2 - Spectrométrie pour un débit de dose de $0,2 \mu\text{Sv h}^{-1}$

3.2 Campagne de mesures

Ce type de mesures qui associe dosimétrie et spectrométrie peut être réalisé pour l'ensemble d'une zone à reconnaître. La reconnaissance d'une superficie maritime d'une dizaine de km^2 nécessite environ une centaine de points de mesures et une dizaine de prélèvements d'échantillons. L'optimisation des points de prélèvement est dirigée par le traitement en "temps réel" du spectre acquis *in situ*.

Une spectrométrie *gamma* Ge des échantillons en laboratoire permet à son tour d'affiner les mesures réalisées *in situ*.

3.3 Traitements possibles des données

Les mesures réalisées *in situ* sont directement exploitables et celles-ci peuvent être organisées au moyen d'un logiciel de système de gestion de base de données.

Le traitement des données permet d'effectuer différentes opérations mathématiques et statistiques : cartographie des anomalies locales, identification du spectre moyen appelé "régional", validation des mesures *in situ* Le résultat cartographique peut alors être interprété en le superposant à d'autres thèmes tel que la sédimentologie, la tectonique, la bathymétrie, la courantologie, la météorologie,

Un outil d'analyse spatiale efficace permet de fédérer toutes les données et visualiser les interrogations retenues sous forme de tableaux, graphiques et cartes.

Un tel système informatique de traitement d'informations localisées se définit comme un Système d'Information Géographique (SIG). En effet, un logiciel de ce type manipule deux types de données :

- données descriptives (épaisseur d'horizon, ...),
- données géographiques (contours cartographiques de l'horizon correspondant, ...).

Il est alors possible de classer des zones selon leur réponse radiométrique et un attribut exogène aux mesures. En effet, les zones de limons fins ou argileuses sont des formations préférentielles de rétention de radionucléides et constituent de ce fait, les endroits à surveiller préférentiellement (mesures ou prélèvements périodiques).

Les possibilités d'analyse et de croisement d'informations d'un tel système ne sont pas figées. Il est toujours possible d'intégrer ultérieurement de nouvelles informations ou de questionner la base de données pour répondre à de nouveaux besoins.

4. Conclusion

La mesure *in situ* en milieu immergé de la dosimétrie du rayonnement *gamma* ambiant et d'une spectrométrie associée réalisée de façon simultanée permet de répondre à la réglementation : cartographie de l'état de référence radiologique des sédiments et de l'eau autour d'installations nucléaires de base.

L'intérêt de la méthode tient au fait de posséder des informations rapidement, directement exploitables par des logiciels "classiques", à partir d'un matériel très vite opérationnel, léger, mobile et fiable. Ceci permet d'optimiser le nombre et la localisation des prélèvements d'échantillons réalisés à partir d'un maillage.

En outre, avec une telle méthodologie, il est également possible de dépister et suivre une contamination occasionnée par des rejets chroniques, incidentels ou accidentels.

RÉFÉRENCES

- Dickson H.W., Kerr G.D., Perdue P.T. (1976) Environmental *gamma*-ray measurements using *in situ* and core sampling techniques. *Health Phys.* **30**, 221-227.
- Gauthier G., Caput C. (1980) Mesure du rayonnement *gamma* ambiant au moyen d'une chambre d'ionisation de grand volume, Note CEA n° 2114, 52 p.
- Gauthier G. *et al.* (1983) Méthodologie de la mesure du rayonnement *gamma* ambiant dans le cadre des études d'impact des installations nucléaires, rapport interne, CEA/DPR/SERE, 26 p.